替代比率法中复合核自旋宇称分布对中子俘获截面推导的影响

颜胜权

中国原子能科学研究院，北京 102413

摘要：不稳定核中子俘获截面对于恒星核合成及恒星内部中子密度研究有重要意义，但由于难以制靶，直接测量极其困难。我们验证了基于(^{18}O, ^{16}O)的替代比率法可以应用于不稳定核的中子俘获截面推导，本工作主要讨论了复合核自旋宇称态对复合核 γ 衰变概率比的影响，认为在中子入射能较高的区域复合核自旋宇称态对 γ 衰变概率比影响很小，在低能区域(^{18}O, ^{16}O)的替代反应生成的复合核倾向布居与中子俘获反应生成的复合核相近的低自旋宇称态。从而证明了替代比率法推导(n,γ)截面的可靠性。

关键词：替代比率法；中子俘获截面；不稳定核

中图分类号：O571.1　　　　文献标志码**：**A

1，引言

宇宙中铁以上的重元素主要由慢速中子俘获过程（s-过程）和快速中子俘获过程（r-过程）在恒星中合成。s-过程发生在中子密度较低(~10^6-10^8/cm^3)的稳定燃烧恒星环境中，路径上半衰期大于数年的不稳定核其中子俘获几率可以与 β 衰变竞争，如 ^{63}Ni，^{79}Se，^{85}Kr 等，俘获一个中子生成更重的同位素核，半衰期更短的核素则主要通过 β 衰变生成另外一种元素。因此 s-过程主要沿着 β 稳定线行进，贡献了约一半的重元素丰度。但大质量恒星在其氦、碳壳层中存在对流过程，对流区域温度明显升高，中子密度也迅速增加，可达~10^{13}/cm^3，路径上一些半衰期以天为量级的核素不再以衰变为主，而通过中子俘获生成更重的同位素，如 ^{59}Fe，^{95}Zr，^{181}Hf 等。s-过程中的不稳定核不但参与重核素的合成，同时在不同的温度、中子密度环境下还会经过不同的路径合成重核素。不同的合成路径会造成后续核素丰度出现差异，而这些与恒星内部温度、中子密度直接关联的差异是研究恒星演化的有效工具。

由于半衰期较短的核素制靶极其困难，尤其是短至数十天、数天的不稳定核素几乎不可能制靶用于中子俘获截面的直接测量，因此 s-过程中大部分短半衰期核素至今没有可靠的实

收稿日期：2023 年 7 月 3 日；修改日期：2024 年 1 月 5 日。

基金项目：　国家重点研发计划(2022YFA1602301)；　国家自然科学基金(12125509，12222514，12005304，11961141003，12275361，U2267205)。

作者简介：　颜胜权(1977—)，男(汉)，四川自贡人，研究员，硕士，粒子物理与核物理专业，从事核天体物理实验测量研究；　E-mail: yanye7703@sina.com。

验结果，仅路径上的稳定核和部分不稳定核的中子俘获截面较为可靠的实验结果[1]。替代比率法是最近在替代法的基础上发展起来的一种新方法用于不稳定核中子俘获截面的间接测量。我们利用 $^{90,92}Zr(^{18}O, ^{16}O\gamma)^{92,94}Zr$ 实验和截面已知的 $^{91}Zr(n, \gamma)^{92}Zr$、$^{93}Zr(n, \gamma)^{94}Zr$ 验证了替代比率法，建立了基于(^{18}O,^{16}O)双中子转移反应的替代比率法[2]。随后，该方法被成功应用于半衰期为数十天的 ^{59}Fe[3]和 ^{95}Zr[4]的中子俘获截面间接测量。双中子转移反应生成的“复合核”（处于高激发态的反应余核）与俘获中子生成的复合核在自旋宇称分布上存在一定的差异，而理论研究认为复合核衰变至γ道时对自旋宇称比较敏感，进而使得间接推导结果与直接测量结果可能存在较大差异。但在验证实验中，$^{93}Zr(n, \gamma)^{94}Zr$ 的推导截面与直接测量结果符合得很好。为此，本文将讨论替代比率法中自旋宇称分布差异对推导结果的影响。

2，替代比率法和实验测量

替代比率法[5]是在替代法基础上发展起来的一种新方法，与替代法相比该方法的主要优点是不需要测量复合核数目，不依赖理论计算。根据 Hauser-Feshbach 复合核理论和 Weisskopf-Ewing 近似，假定γ衰变概率不明显依赖于复合核的自旋宇称，则 A(n, γ)B 截面可写为：

$$\sigma_{A(n,\gamma)B}(E_n) = \sigma_{n+A}^{CN}(E_n) \times G_{B^*\to\gamma+B}^{CN}(E_n) \qquad (1)$$

其中 $\sigma_{n+A}^{CN}(E_n)$ 为复合核形成截面， $G_{B^*\to\gamma+B}^{CN}(E_n)$ 为复合核衰变到γ道概率（或中子俘获概率）。E_n 为中子入射能。在替代比率法中，一个截面已知的参照反应 A2(n, γ)B2 将用于目标反应 A1(n, γ)B1 的推导。基于等式(1)，两个反应截面的比率可写为：

$$\frac{\sigma_{A1(n,\gamma)B1}(E_n)}{\sigma_{A2(n,\gamma)B2}(E_n)} = \frac{\sigma_{n+A1}^{CN}(E_n) \times G_{B1^*\to\gamma+B1}^{CN}(E_n)}{\sigma_{n+A2}^{CN}(E_n) \times G_{B2^*\to\gamma+B2}^{CN}(E_n)} \approx \frac{G_{B1^*\to\gamma+B1}^{CN}(E_n)}{G_{B2^*\to\gamma+B2}^{CN}(E_n)} \qquad (2)$$

如果选择的参照反应与目标反应相似，可以使得 $\sigma_{n+A1}^{CN}(E_n) / \sigma_{n+A2}^{CN}(E_n) \approx 1$，则两个中子俘获截面之比可以简化为复合核衰变到γ道的概率之比。实验测量时，我们采用实验室易于实现的替代反应 d1+D1→b1+B1*与 d2+D2→b2+B2*生成复合核 B1*和 B2*，并测量其衰变到γ道的概率比。利用该比值和截面的已知的参照反应 A2(n, γ)B2 截面可以得到目标反应 A1(n, γ)B1 截面。如验证实验利用 $^{90}Zr(^{18}O, ^{16}O)^{92}Zr^*$代替 ^{91}Zr+n 合成复合核 $^{92}Zr^*$，利用 $^{92}Zr(^{18}O, ^{16}O)^{94}Zr^*$代替 ^{93}Zr+n 合成复合核 $^{94}Zr^*$，并测量 $^{94}Zr^*$和 $^{92}Zr^*$衰变到γ道的衰变概率比，结合 $^{91}Zr(n, \gamma)^{92}Zr$ 直接测量截面则可以推导出 $^{93}Zr(n, \gamma)^{94}Zr$ 截面。

在该实验测量中，我们利用加速器加速 117 MeV 的 ^{18}O 轰击 ^{90}Zr、^{92}Zr 高富集同位素金属自撑靶，用ΔE-E 硅望远镜(碗形ΔE 阵列和 Micron 公司的 S1 型环形探测器组成)覆盖 22 - 39 度出射角(望远镜角度分辨好于 1 度)，探测和鉴别出射的轻粒子，粒子鉴别谱如图 1。通过 $^{90,92}Zr(^{18}O, ^{16}O)^{92,94}Zr^*$双中子转移后出射的 ^{16}O 的能量和出射角度，利用两体运动学可以重构 $^{92}Zr^*$或 $^{94}Zr^*$激发态能量。$^{92}Zr^*$或 $^{94}Zr^*$发射的特征γ用溴化镧探测器探测，并与硅探测

器鉴别的 ^{16}O 符合。实验设置详见参考文献[2]。实验中我们确定了 ^{92,}Zr*或 ^{94}Zr*的激发态能量，并探测到了 ^{92}Zr*或 ^{94}Zr*发射的特征 γ，经靶、束流归一，以及探测器效率等实验参数修正后，即可得到通过双中子转移反应生成的复合核 ^{92}Zr*和 ^{94}Zr*的 γ 道衰变概率比。实验确定了 ^{92}Zr*和 ^{94}Zr*的 γ 道衰变概率比， 即可结合 ^{91}Zr(n, γ)^{92}Zr 直接测量截面推导出 ^{93}Zr(n, γ)^{94}Zr 截面。我们还在同样的实验设置下测量 ^{94}Zr(^{18}O, ^{16}O)^{96}Zr*反应，用于推导 ^{95}Zr 的中子俘获截面。

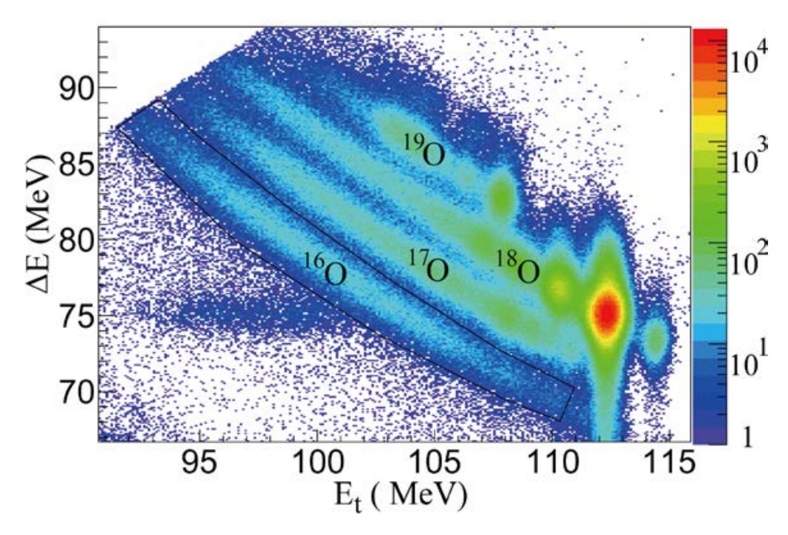


图 1，(在线彩图)^{18}O+^{94}Zr 反应产物粒子鉴别二维谱。纵坐标为粒子在 Δ*E* 探测器中的能量损失，横坐标为粒子的总能量。

3，复合核 γ 道衰变概率比

Chiba & Iwamoto 研究[6]认为在低能区(~ E_n < 3 MeV)，复合核衰变到 γ 道的概率（即俘获概率）对复合核自旋宇称依赖性较强。这是因为低能区复合核能级密度较小，衰变到 γ 道时分离能级跃迁占比大，对自旋宇称更为敏感；而高能区复合核能级密度大幅增加，连续能级跃迁逐渐占优，对自旋宇称敏感度降低。如图 2，我们用 TALYS 程序计算了复合核 ^{92}Zr*处于不同的自旋宇称的 γ 道衰变概率随中子入射能变化的情况。在图 2 中，入射中子能量小于 3 MeV 时， 复合核 ^{92}Zr*衰变到 γ 道的概率在不同的自旋宇称态下，差别可达 2 - 3 个量级，如处于 7^-、8^-态的 γ 道衰变概率要比处于 1^-、2^-、3^-和 4^-态衰变概率大两个量级以上。而在高能区域，入射中子能量大于 3 MeV 时，γ 道衰变概率在不同的自旋宇称态下开始收敛。因此，若替代反应生成的“复合核”与中子俘获生成的复合核在自旋宇称上存在显著的区别，二者衰变到 γ 道的概率在高能区域差异相对较小，但在低能区则会出现数量级的巨大差异。因此，采用替代法推导(n,γ)截面时，由于替代反应生成的“复合核”自旋宇称分布与中子俘获反应生成的复合核自旋宇称分布不同，衰变到 γ 道的概率很可能存在较大差异，间接推导得到的截面与直接测量截面就可能存在较大的差异。

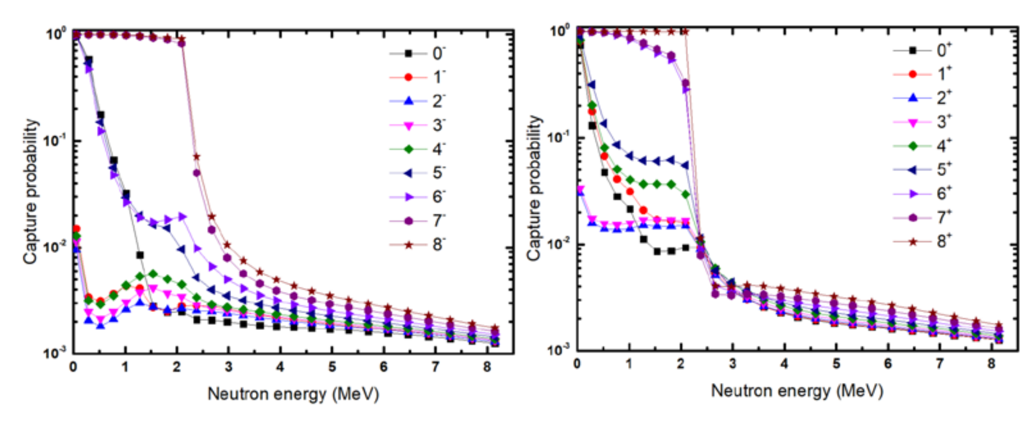


图 2，(在线彩图)^{92}Zr*在不同的自旋宇称下衰变道 γ 道的概率

替代比率法引入了一个与目标反应 A1(n, γ)B1 相似的参照反应 A2(n, γ)B2，利用两个“复合核”γ 道衰变概率比（或俘获概率比）来推导截面，即(2)式。为了研究复合核的 γ 道衰变概率比，我们计算了 ^{94}Zr*和 ^{92}Zr*在同样的自旋宇称态下的 γ 道衰变概率比值随中子入射能变化情况，如 ^{94}Zr*和 ^{92}Zr*同时处于 8^+态、中子入射能为 3.8 MeV 时，两个复合核的 γ 道衰变概率比(^{94}Zr*/^{92}Zr*)为 4.7 左右。我们依次计算了 ^{94}Zr*和 ^{92}Zr*自旋从 0 – 8、宇称为正为负的该比值随中子入射能变化情况，如图 3 所示。相对于图 2 中不同自旋宇称态下 ^{92}Zr*的 γ 衰变概率呈 2-3 个量级变化，^{94}Zr*和 ^{92}Zr*的 γ 衰变概率比处于不同自旋宇称态时差异就要小得多。尤其是在中子入射能高于 6 MeV 时，各自旋宇称态下的 γ 衰变概率比几乎完美地收敛在一个很窄的范围内，即使替代反应生成的复合核与中子俘获生成的复合核自旋宇称分布存在较大差异，其 γ 衰变概率比也会近似一致。因此在中子入射能较高的能区，替代比率法推导的截面与直接测量截面会趋近一致。但在中子入射能小于 2 MeV 时，比值在 0 - 2 之间变化；而 2 – 6 MeV 能区，自旋宇称态为 8^+、7^+、6^+和 8^-的比值则出现了较为剧烈的变化，而较小的自旋态，如小于 4 的自旋态的比值趋近一致。

我们在实验上测量了(^{18}O,^{16}O)替代反应生成 ^{94}Zr*和 ^{92}Zr*衰变至 γ 道的衰变概率比，如图 3 中空心五角星（由于高能区 γ 衰变概率比在各自旋宇称态下收敛，因此我们将实验数据与理论计算在高能区对齐）。由于实验测量无法分辨复合核的自旋宇称态，测得比值为所有自旋宇称态的贡献。对比理论计算和实验测量数据，在中子入射能为 2 - 6 MeV 范围内实验数据似乎不支持(^{18}O,^{16}O)反应生成的复合核布居自旋大于 8 以上的自旋态，而更倾向生成自旋较小的复合核。而在中子入射能小于 5MeV 区域，由于 ^{91,93,95}Zr 基态自旋为 5/2 且低能中子带入的角动量较小，复合核主要布居小于 5 的自旋态，与(^{18}O,^{16}O)替代反应生成的复合核布局的自旋在同一范围。同时，理论计算显示自旋态小于 5 的复合核衰变概率比值趋于相同，因此替代比率法从实验上测到的比值与中子俘获生成核的衰变概率比会趋近一致，从而使得替代比率法推导的(n, γ)截面与直接测量截面在一定的误差范围内相符。这个误差范围约为 30%以内，主要来源于实验测量误差，理论简化(比率法中约去了复合核生成截面以及γ衰变概率不明显依赖于复合核的自旋宇称假设)带来的误差，以及参照反应的误差传递等。

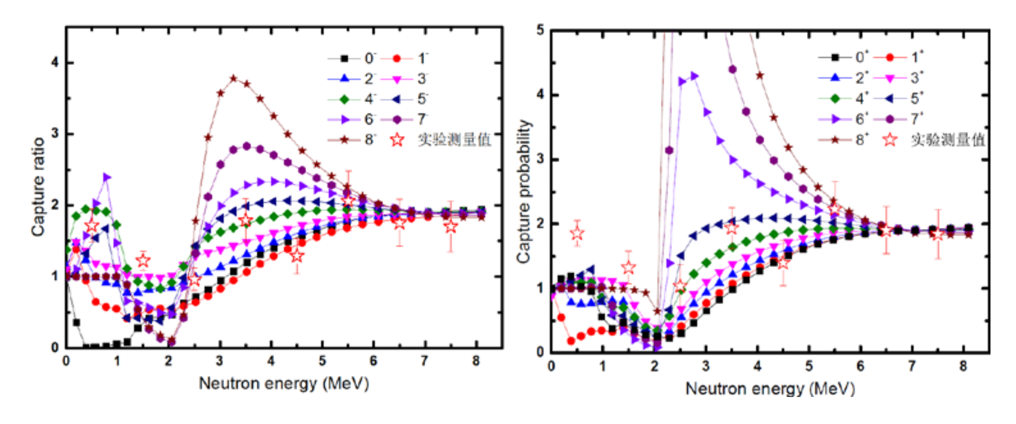


图 3，(在线彩图)复合核 ^{94}Zr*和 ^{92}Zr*在同一自旋宇称态下的 γ 道衰变概率比(或俘获概率比)随中子入射能变化曲线，每条曲线对应各自的自旋宇称态。

我们还在同样的实验设置下测量 ^{94}Zr(^{18}O, ^{16}O)^{96}Zr*反应，因此我们还研究 ^{96}Zr*与 ^{92}Zr*的比值情况，如图 4，和 ^{96}Zr*与 ^{94}Zr*的比值情况，如图 5。理论计算与实验数据对比情况与 ^{94}Zr*与 ^{92}Zr*情况相似，认为(^{18}O, ^{16}O)双中子转移反应生成的“复合核”倾向布局自旋较小的低自旋态，与中子俘获生成核自旋分布相近，使得替代比率法推导截面更趋近于(n, γ)直接测量值。但在低能量区域，尤其是中子入射能小于 1 MeV 区域，实验数据明显高于理论计算，需更深入地研究其反应机制和机理。

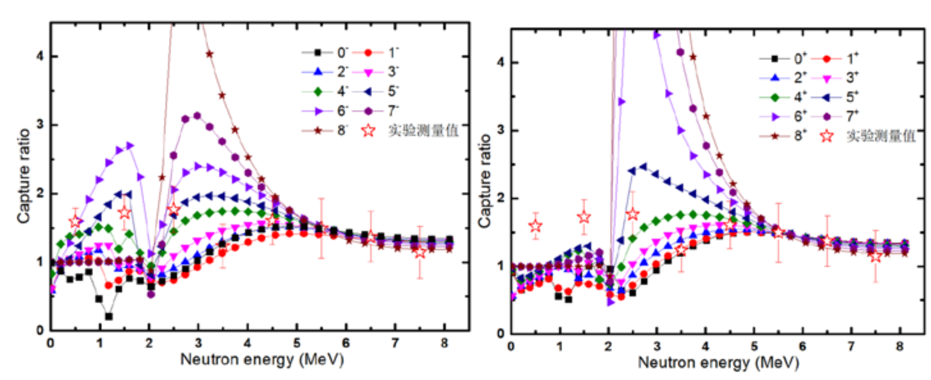


图 4，(在线彩图)复合核 ^{96}Zr*和 ^{92}Zr*在同一自旋宇称态下的 γ 道衰变概率比随中子入射能变化曲线。

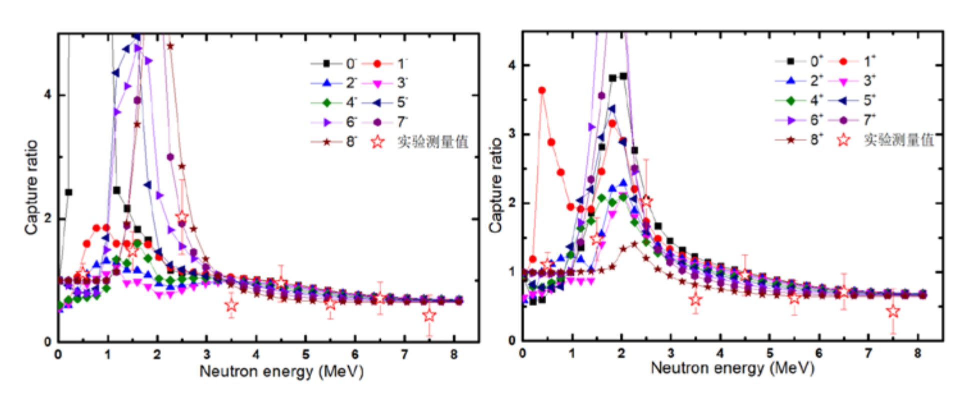


图 5，(在线彩图)复合核 ^{96}Zr*和 ^{94}Zr*在同一自旋宇称态下的 γ 道衰变概率比随中子入射能变化曲线。

4，结论和讨论

s-过程中涉及的不稳定核中子俘获截面测量对于恒星核合成以及恒星内部温度、中子密度研究都有非常重要的意义。但短半衰期核素无法制靶进行直接测量，因此只能采取间接实验方法进行测量和推导。替代比率法是近年在替代法基础上发展起来的一中新方法，我们利

用 $^{90,92}Zr(^{18}O,\ ^{16}O\gamma)^{92,94}Zr$ 实验测量和截面已知的 $^{91}Zr(n,\gamma)^{92}Zr$、$^{93}Zr(n,\gamma)^{94}Zr$ 验证了替代比率法，建立了基于(^{18}O,^{16}O)双中子转移反应的替代比率法，将替代比率法推广至不稳定核(n, γ)截面的间接测量和推导。替代比率法推导(n, γ)截面最大的障碍源于替代反应和中子俘获反应生成的复合核自旋宇称存在差异，而 γ 衰变概率又对复合核自旋宇称较为敏感。本文以 $^{92}Zr^*$和 $^{94}Zr^*$为例，讨论了复合核自旋宇称态对复合核 γ 衰变概率比的影响。认为在中子入射能较高的能区，复合核自旋宇称对 γ 衰变概率比影响极小，间接测量截面可以与直接测量结果比拟。但在低能区域，γ 衰变概率比则会出现较为剧烈的变化，尤其是自旋大于 7 的态。但将理论计算与实验测量比较后发现，(^{18}O,^{16}O)双中子转移反应的实验数据不太支持生成“复合核”处于较高自旋态，而倾向于处于与中子俘获相近的低自旋态。由此也证明了替代比率法推导(n, γ)截面的可靠性和可行性。但相对于重核，轻核能级密度较小[7]，γ 道衰变概率对复合核自旋宇称更为敏感，采用替代比率法推导的结果误差也会显著增大；而在 $A > 50$ 区域，重核能级密度逐渐增大，对复合核自旋宇称分布敏感度逐渐降低，推导的结果会更趋近于真实值。

参考文献：

[1] KAPPELER F, GALLINO R, BISTER S and AOKI Wako, The s process: Nuclear physics, stellar models, and observations. Rev Mod Phys, 2011, 83, 157

[2] YAN S Q, LI Z H, WANG Y B, *et al.*, Examination of the surrogate ratio method for the determination of the $^{93}Zr(n,\gamma)\ ^{94}Zr$ cross section with $^{90,92}Zr(^{18}O,^{16}O)\ ^{92,94}Zr$ reactions[J]. Phys Rev C, 2016, 94, 015804

[3] YAN S Q, LI X Y, NISHIO K, *et al.*, The $^{59}Fe\ (n,\gamma)\ ^{60}Fe$ Cross Section from the Surrogate Ratio Method and Its Effect on the ^{60}Fe Nucleosynthesis. ApJ, 2021, 919:84

[4] YAN S Q, LI Z H, WANG Y B, *et al.*, The $^{95}Zr(n,\gamma)^{96}Zr$ Cross Section from the Surrogate Ratio Method and Its Effect on s-process Nucleosynthesis. ApJ, 2017, 848:98

[5] ESCHER J E, BURKE J T, DIETRICH F S, *et al.* Compound-nuclear reaction cross sections from surrogate measurements[J]. Rev Mod Phys, 2012, 84, 353

[6] CHIBA S and IWAMOTO O, Verification of the surrogate ratio method[J]. Phys Rev C, 2010, 81, 044604

[7] CAPOTE R, HERMAN M, OBLOZINSKY P, et al., RIPL – Reference Input Parameter Library for calculation of Nuclear Reactions and Nuclear Data Evaluations. Nucl. Data Sheets, 2009,110, 3107

The effect of spin-parity distribution in (n, γ) cross section determination

YAN Shengquan

China Institute of Atomic Energy, P.O. Box 275(10), Beijing 102413, People’s Republic of China

Abstract: Due to the difficulties of the direct measurement of unstable nuclei neutron capture cross section, the surrogate ratio method had been proved valid in (n, γ) determination. The difference of the spin-parity distribution in compound nuclei that formed by surrogate reaction or neutron capture was discussed in this work. The γ-decay probabilities ratio of ^{92}Zr* and ^{94}Zr* were calculated in various spin-parities up to 8 with TALYS code, and the calculation shows the ratio is insensitive to their spin-parity distribution in high incident neutron energies. The measured γ-decay probabilities ratios of ^{92}Zr* and ^{94}Zr* were compared to the theoretical calculations, it imply that the spin-parity distributions of compound nuclei formed by (^{18}O, ^{16}O) reactions are similar to the one formed by neutron captures.

Key words: the surrogate ratio method; neutron capture cross section; unstable nuclei

Received date: 3 Jul. 2023; **Revised date:** 5 Feb. 2024

Foundation item: National Key Research and Development Plan(2022YFA1602301); National Natural Science Foundation of China (12125509，12222514，12005304，11961141003，12275361，U2267205).

E-mail: yanye7703@sina.com.